

Atomic vapor laser isotopic separation of thallium-203 from natural thallium and lead-210 from natural lead involves photon excitation of natural thallium or lead vapor, followed by field ionization and electrostatic extraction

Patent Number: ☐ [FR2790974](#)
Publication date: 2000-09-22
Inventor(s): JOHNSON MICHAEL A; WORDEN EARL F; HAYMAN CHRISTOPHER A; SCHEIBNER KARL F
Applicant(s): US ENRICHMENT CORP (US)
Requested Patent: ☐ [JP2000262866](#)
Application Number: FR19990007204 19990608
Priority Number(s): US19990273229 19990318
IPC Classification: B01D59/34; C22B61/00
EC Classification: B01D59/34
Equivalents:

Abstract

Process comprises using a laser system (101) involving quasi-resonant photon excitation, two photon resonant excitation, or excitation at one or more Rydberg levels, followed by field ionization and electrostatic extraction. The wavelength in the intermediate quasi-resonant state is counter-propagated with respect to the second wavelength necessary to populate the final Rydberg state. Separation of thallium-203 isotope starting from thallium vapor containing more than one isotope including thallium-203 involves: (a) producing photons having a first frequency by a laser system (101), where a first wavelength corresponding to a first frequency is around 377.7 nanometers; (b) producing photons having a second frequency by the same laser system (101), where a second wavelength corresponding to the second frequency is 443.7 nanometers; (c) pumping the photons having the first and second frequencies into the thallium vapor, where the photons having the first frequency excite a number of thallium-203 atoms in the fundamental state to an intermediate quasi-resonant state, and the photons having the second frequency excite the number of thallium-203 atoms in the intermediate quasi-resonant state to a final Rydberg state; and (d) collecting the thallium-203 isotope. An Independent claim is also included for a process for separation of thallium-203 isotope starting from thallium vapor containing more than one isotope including thallium-203.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

BEST AVAILABLE COPY

①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
PARIS

①1 N° de publication :
(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

2 790 974

②1 N° d'enregistrement national :

99 07204

⑤1 Int Cl⁷ : B 01 D 59/34, C 22 B 61/00

⑫

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②2 Date de dépôt : 08.06.99.

③0 Priorité : 18.03.99 US 00273229.

④3 Date de mise à la disposition du public de la
demande : 22.09.00 Bulletin 00/38.

⑤6 Liste des documents cités dans le rapport de
recherche préliminaire : *Ce dernier n'a pas été
établi à la date de publication de la demande.*

⑥0 Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

⑦1 Demandeur(s) : UNITED STATES ENRICHMENT
CORPORATION — US.

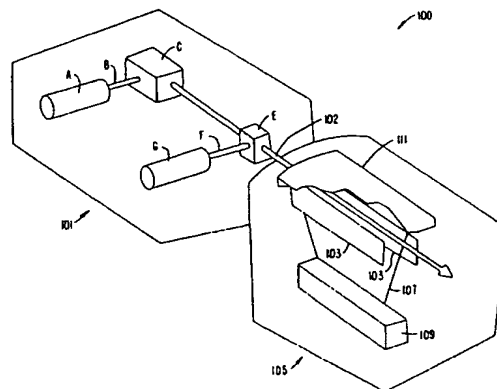
⑦2 Inventeur(s) : SCHEIBNER KARL F, HAYMAN
CHRISTOPHER A, JOHNSON MICHAEL A et WOR-
DEN EARL F.

⑦3 Titulaire(s) :

⑦4 Mandataire(s) : SOCIETE DE PROTECTION DES
INVENTIONS.

⑤4 SEPARATION ISOTOPIQUE PAR LASER A VAPEUR ATOMIQUE DES ISOTOPES THALLIUM 203 ET PLOMB 210.

⑤7 La présente invention concerne un processus isotopiquement sélectif au moyen d'un système de laser (101) impliquant une excitation à un photon quasi-résonante, à deux photons résonante d'un ou plusieurs niveaux de Rydberg, suivie d'une ionisation par un champ et d'une extraction électrostatique. La longueur d'onde à l'état intermédiaire quasi-résonant est contre-propagée par rapport à la deuxième longueur d'onde nécessaire pour peupler l'état de Rydberg final. Ce schéma tire parti de la grande section efficace du premier état excité et seules des fluences de laser modestes sont nécessaires.



FR 2 790 974 - A1



DESCRIPTIONSÉPARATION ISOTOPIQUE PAR LASER À VAPEUR ATOMIQUE
DES ISOTOPES THALLIUM 203 ET PLOMB 210

Le Gouvernement des Etats-Unis possède des droits sur la présente invention en vertu du Contrat Numéro W-7405-ENG-48 passé entre le Département de l'Energie des Etats-Unis et l'Université de Californie.

5

La présente invention concerne la séparation d'isotopes et, plus particulièrement, la séparation d'isotopes en utilisant un procédé isotopiquement sélectif à l'aide d'un laser.

10

A l'état naturel, le thallium contient deux isotopes stables, le thallium 203 et le thallium 205 (c'est-à-dire ^{203}Tl et ^{205}Tl). Le composant thallium 203 constitue 30 % du thallium présent à l'état naturel. Du
15 thallium enrichi en thallium 203 avec une pureté supérieure à 95 pour cent est disponible dans le commerce et utilisé par l'industrie radiopharmaceutique comme précurseur du thallium 201. Le thallium 201, largement utilisé pour l'imagerie cardiaque et
20 cérébrale, est préparé par bombardement protonique de thallium 203 enrichi dans un cyclotron. Le thallium 201 injecté dans la circulation sanguine pénètre préférentiellement dans le muscle cardiaque et décroît par capture d'électrons, produisant des rayons gamma de
25 167 keV (ou moins). Les rayons gamma sont imagés pour indiquer quelles sont les parties du cœur qui ont un afflux sanguin correct après une attaque cardiaque.

A l'état naturel non extrait, le plomb contient un

certain nombre d'isotopes, dont le plomb 210 (c'est-à-dire ^{210}Pb). Le plomb 210 est radioactif, avec une demi-vie d'environ 22 ans. En conséquence, le plomb artésien vieux de plusieurs siècles a une concentration en plomb
5 210 significativement inférieure à celle de plomb naturel relativement jeune. Malheureusement, les réserves mondiales de plomb artésien disparaissent à mesure que la demande pour ce métal augmente. Une des principales utilisations de plomb avec une
10 concentration exceptionnellement faible en plomb 210 est l'industrie électronique (par exemple de la soudure) car les particules α émises par le plomb radioactif provoquent fréquemment des erreurs logicielles dans les circuits électroniques. De plus,
15 la sensibilité aux particules α augmente à mesure que l'industrie électronique va vers des densités plus grandes et des architectures à trois dimensions nécessitant des tensions et des tailles de motifs réduites et un nombre d'interconnexions et une densité
20 accrues.

La séparation isotopique par laser à vapeur atomique (SILVA) a été démontrée sur un certain nombre d'éléments dont l'uranium, le gadolinium et d'autres éléments du groupe des lanthanides. Par exemple,
25 Paisner et al., brevet américain n° 5 202 005 (1993) enseignent l'enrichissement isotopique du ^{157}Gd par photo-ionisation sélective. Toutefois, pour déterminer si la SILVA est techniquement faisable pour un élément donné, il est nécessaire de prendre en compte de
30 manière détaillée des aspects très divers incluant le trajet de photo-ionisation, la préparation spectroscopique du courant de vapeur d'alimentation et la récupération efficace du produit sans contamination

par les produits de queue ou de tête. Une évaluation définitive de l'applicabilité de la SILVA nécessite de connaître les écarts isotopiques, les dédoublements hyperfins, les énergies et les désignations d'état, les
5 durées de vie d'état et les rapports de branchement. Dans les cas où la SILVA s'avère techniquement faisable, on réalise ensuite une évaluation économique afin de déterminer la compétitivité en termes de coût de cette technique par rapport à d'autres techniques de
10 séparation lorsqu'il en existe ou par rapport à la valeur du produit lorsqu'il n'en existe pas.

Ces analyses nécessitent la connaissance du trajet de photo-ionisation, la connaissance du nombre, des puissances, des fréquences et d'autres caractéristiques
15 des lasers ainsi que la connaissance des propriétés du matériau conduisant à la détermination des propriétés de la vapeur. La plupart des trajets de photo-ionisation nécessitent typiquement une puissance de laser excessive et ne débouchent pas sur un procédé de
20 séparation isotopique économiquement réalisable. Une adaptation soigneuse des lasers existants aux transitions possibles est également à prendre en compte au plan économique.

Par conséquent, un procédé fiable et économique est
25 souhaitable pour séparer le thallium 203 et le plomb 210.

La présente invention propose un procédé laser et un appareil isotopiquement sélectifs, impliquant de
30 préférence une excitation à un photon quasi-résonante, à deux photons résonante d'un ou plusieurs niveaux de Rydberg, suivie d'une ionisation par champ puis d'une extraction électrostatique. La longueur d'onde à l'état

intermédiaire quasi-résonant est contre-propagée par rapport à la deuxième longueur d'onde nécessaire pour peupler l'état de Rydberg final. Ce schéma tire parti de la grande section efficace du premier état excité et
5 ne nécessite ainsi que des fluences de laser modestes. Le procédé non résonant contribue à éviter les problèmes de gain Raman stimulé et d'absorption directe de la lumière du procédé de première transition par des isotopes non souhaités.

10 Dans un mode de réalisation, le système de l'invention est utilisé pour séparer le thallium 203 du thallium présent à l'état naturel. Dans un autre mode de réalisation, le système est utilisé pour séparer le plomb 210 du plomb présent à l'état naturel.

15 La présente invention sera mieux comprise à la lecture de la description d'exemples de réalisation donnés ci-après, à titre purement indicatif et nullement limitatif, en faisant référence aux dessins annexés sur lesquels :
20

La figure 1 illustre un système de séparation isotopique par laser à vapeur atomique selon l'invention ;

25 La figure 2 illustre le fonctionnement de l'appareil de séparation isotopique de l'invention à un temps t_0 ;

La figure 3 illustre le fonctionnement de l'appareil de séparation isotopique de l'invention à un temps t_1 ;

30 La figure 4 illustre le fonctionnement de l'appareil de séparation isotopique de l'invention à un temps t_2 ;

La figure 5 est une illustration des trajets de photo-ionisation pour le thallium ; et

La figure 6 est une illustration des trajets de photo-ionisation pour le plomb.

Plusieurs problèmes se posent lorsqu'on applique la
5 séparation isotopique par laser soit au plomb 210, soit
au thallium 203. Pour le thallium 203, l'écart
isotopique est petit comparé au profil Doppler d'une
expansion de vapeur typique (c'est-à-dire
10 environ 1,66 GHz). Typiquement, une source qui vaporise
des quantités importantes de matière (c'est-à-dire plus
de quelques grammes par heure) produit de la vapeur
avec une largeur Doppler associée d'environ 1 à 2 GHz
également. Par conséquent, il est nécessaire de veiller
à réduire la largeur Doppler et de configurer les
15 lasers accordés avec précision afin de photo-ioniser
uniquement le thallium 203. Un autre problème lors de
l'application de cette technique au thallium est dû à
la proximité fréquentielle étroite du thallium 203 et
du thallium 205. A cause de cette proximité en
20 fréquence, une diffusion de Raman stimulée est probable
qui, si on ne la modère pas, conduit à un rendement
d'ionisation sélective moindre et à des besoins accrus
en puissance de laser.

Les problèmes associés à la séparation du plomb 210
25 en utilisant la séparation isotopique par laser sont
très similaires à ceux rencontrés avec le thallium. La
composante hyperfine à $F = 3/2$ du plomb 207 (c'est-à-
dire ^{207}Pb) est la plus proche voisine du plomb 210 et
présente une abondance naturelle de l'ordre de 23 pour
30 cent. L'écart isotopique pour une transition entre le
plomb 210 et le plomb 207 est d'environ 1 GHz. Comme on
l'a noté plus haut, une diffusion de Raman stimulée est
probable du fait de la proximité fréquentielle étroite

des deux isotopes. Un problème apparenté est que le plomb 207 absorbe une quantité substantielle de puissance à 283 nanomètres, créant ainsi un problème de pompage potentiel.

5 La figure 1 illustre un système de séparation isotopique par laser à vapeur atomique (SILVA) 100 selon l'invention. Un sous-système de laser 101 génère une lumière laser accordée avec précision et à bande passante étroite 102 de longueurs d'onde appropriées.

10 La lumière 102 émise par le sous-système de laser 101 passe entre deux extracteurs 103 dans un sous-système séparateur 105. Les extracteurs 103 sont montés au-dessus d'un sous-système de collimateur qui laisse passer entre les extracteurs uniquement une partie bien

15 collimatée 107 du courant de vapeur supersonique produit par une source 109. Le faisceau de lumière 102 venant du sous-système de laser 101 bissecte le courant de vapeur 107 et place sélectivement l'isotope recherché dans des niveaux de Rydberg élevés qui sont

20 ensuite ionisés au moyen d'un champ par les extracteurs 103. Après que l'isotope recherché a été ionisé, il est enlevé électrostatiquement du courant de vapeur 107 par les mêmes extracteurs. Le courant de vapeur restant désormais appauvri en cet isotope continue à passer

25 entre les extracteurs 103 et est recueilli sur un sous-système de collecteur 111. Un sous-système d'anodes est nécessaire pour pendre et juste toucher la zone de photo-ionisation afin de fournir un trajet électrique pour les électrons associés aux ions de l'isotope

30 souhaité.

Les figures 2 à 4 illustrent trois points temporels du fonctionnement de l'appareil séparateur 105. Comme on l'a noté plus haut, le sous-système 105 comprend une

source multi-isotopes 109, une paire de structures d'extracteurs 103 disposées sur des côtés opposés d'une zone 201 comprenant le courant de vapeur 107, et un collecteur de produit 111.

5 A un temps t_0 , la source 109 produit un courant d'isotopes suivant des processus bien connus dans la technique. Un atome (non ionisé) est représenté par une flèche 203 indiquant le trajet de cet atome. Après que les isotopes ont pénétré dans la zone 201, des
10 faisceaux laser (non représentés) excitent les isotopes, soit de thallium 203, soit de plomb 210, dans des états de Rydberg selon le processus décrit plus en détail ci-après. Les structures d'extracteurs 103 sont mises à un état électriquement neutre ou à basse
15 tension (< 15 V) au cours de cette étape.

 A un temps t_1 , typiquement de l'ordre d'une microseconde après t_0 , les structures d'extracteurs 103 sont chargées négativement. L'attraction qui s'ensuit entre les extracteurs 103 et les atomes de Rydberg \oplus
20 ionisés par le champ attire soit les atomes de thallium 203, soit les atomes de plomb 210, suivant l'application, vers et sur les structures d'extracteurs 103. L'impulsion des atomes non ionisés les porte vers et sur le collecteur de produit 111, qui
25 présente de préférence une charge neutre. Sur la figure 3, les flèches en tirets 301 représentent les trajets des ions \oplus tandis que les flèches 203 continuent à représenter des atomes non ionisés et leurs trajets à travers l'appareil 105.

30 A un temps ultérieur t_2 , comme le montre la figure 4, le sous-produit (soit du thallium 203, soit du plomb 210) s'est accumulé sur les structures de collecteurs 103 toujours chargées négativement, tandis

que le thallium appauvri ou le plomb purifié restant est recueilli sur le collecteur de produit 111. (Une anode de l'appareil 105, non représentée, recueille les électrons libres venant de la zone 201.)

- 5 Chose notable, seul un des deux lasers impliqués (ici le premier) nécessite une modulation. Les deux couleurs de processus λ_1 et λ_2 sont contre-propagées l'une par rapport à l'autre afin de tirer parti de leur proximité fréquentielle étroite. Cette proximité réduit
- 10 la largeur Doppler à deux photons. Etant donné que la fluence par unité de largeur de bande est le facteur de mérite important pour une population de Rydberg efficace, cette réduction de largeur diminue à son tour les exigences en matière de fluence du laser et accroît
- 15 la sélectivité. Il est à noter qu'une source 109 à largeur Doppler faible permet de concentrer davantage la lumière des lasers dans l'espace fréquentiel tout en couvrant le profil Doppler de la vapeur atomique et facilite la séparation des isotopes pour les éléments
- 20 qui ont de petits écarts isotopiques. Enfin, en évitant toute véritable population de l'état intermédiaire quasi-résonant, on évite les difficultés qu'il y a à peupler un niveau ayant une durée de vie courte dans la mesure où la totalité de la population atomique se
- 25 trouve soit à l'état fondamental, soit à l'état de Rydberg.

Séparation du thallium 203

- 30 La présente invention utilise des états de Rydberg élevés. Dans cette approche, des atomes sont excités dans les états de Rydberg en l'absence d'un champ électrique, un processus isotopiquement sélectif. Les atomes ont typiquement des durées de vie radiatives

d'environ 50 microsecondes. Suite à la population des niveaux de Rydberg, les atomes sont soumis à un champ électrique de forte intensité, typiquement de l'ordre de 2 kV/cm. Sous l'effet du champ électrique appliqué, les atomes de Rydberg sont ionisés dans un processus appelé ionisation par champ.

La figure 5 est une illustration des trajets de photo-ionisation pour le thallium qui sont utilisés dans la présente invention. Comme on peut le voir, on utilise un processus à deux photons dans lequel un photon de fréquence λ_1 excite les atomes de thallium à partir d'un état fondamental 501 (c'est-à-dire $^2P_{1/2}$, $6s^26p$) dans un état intermédiaire 503. L'état 503 est voisin de l'état résonant 505 (c'est-à-dire $^2S_{1/2}$, $6s^27s$), qui est à $26\,477,5\text{ cm}^{-1}$ au-dessus de l'état fondamental 501. Une longueur d'onde de transition du laser λ_{RS} de 377,7 nanomètres est nécessaire pour atteindre l'état résonant 505. Par conséquent, λ_1 est accordé loin de λ_{RS} de 1 GHz par rapport au thallium 203 et donc de 2,66 GHz par rapport au thallium 205.

On n'obtient aucune population substantielle de l'état 503 mais, au lieu de cela, les atomes à l'état fondamental sont excités directement par un deuxième photon de fréquence λ_2 dans un état de Rydberg final 507. Dans ce mode de réalisation, le niveau de Rydberg 507 est à $49\,013\text{ cm}^{-1}$ avec une durée de vie de 50 microsecondes et une section efficace d'absorption de 5×10^{-15} . Le choix du niveau de Rydberg est un compromis entre la durée de vie et la section efficace d'absorption. A mesure que la durée de vie augmente, la section efficace diminue. Des sections efficaces plus petites nécessitent une plus grande puissance de laser tandis que des durées de vie plus courtes signifient

une décroissance radiative de la population plus importante avant que les atomes de Rydberg soient ionisés par le champ. Dans ce mode de réalisation, les longueurs d'onde de λ_1 et λ_2 sont de 377,7 et 443,7 nanomètres, respectivement.

Dans le mode de réalisation préféré, λ_1 et λ_2 sont contre-propagées, ce qui réduit la largeur Doppler des photons par un facteur trois et augmente grandement la sélectivité du processus. On détermine que l'écart isotopique de deux photons (IS) est de 1,18 GHz. Un autre avantage de ce mode de réalisation est que, grâce à l'accord hors résonance, la probabilité de transition du thallium 205 vers l'état métastable 509 est réduite de plus de 60 %. De plus, étant donné que le thallium 205 est hors résonance pendant les étapes à deux photons, le procédé est très sélectif.

Un autre avantage de ce mode de réalisation est que deux lasers seulement sont nécessaires et que seul l'un d'entre eux doit être modulé pour couvrir le profil Doppler. Par conséquent, seul le laser de faible puissance qui produit λ_1 a besoin d'être modulé. De plus, étant donné que l'état intermédiaire est seulement voisin de la résonance et qu'il n'y a pas de transfert de population réelle, le laser qui produit λ_1 peut être modulé ("chirp") afin de transférer la totalité de la population de l'état fondamental au niveau F auquel on accède vers le niveau de Rydberg avant ionisation par le champ.

Dans le mode de réalisation préféré de l'invention, on utilise un laser supplémentaire qui produit une longueur d'onde presque identique à celle du laser λ_1 , ce qui permet d'accéder à la fois aux niveaux à structure fine de l'état fondamental à $F = 0$ et $F = 1$

et de les pomper de manière quasi-résonante par l'intermédiaire de l'état intermédiaire à $F = 1$. Comme dans le mode de réalisation décrit plus haut, seule une longueur d'onde λ_2 unique est nécessaire pour accéder à la totalité de la population de l'état fondamental. Afin de saturer cette transition et faire remonter efficacement la totalité de la population au niveau de Rydberg excité, le laser qui produit λ_2 doit générer au moins 20 watts.

La section efficace et la largeur de raie du niveau de Rydberg 507 sont mesurées en fonction du champ électrique. L'électron de Rydberg faiblement lié est fortement influencé par les champs électriques externes et se mélange dans tous les autres sous-niveaux de moment cinétique associés à un niveau de Rydberg tel que caractérisé par le nombre quantique principal, n . Etant donné que l'ionisation finale se fait en appliquant un champ électrique de forte intensité à l'atome de Rydberg, on a déterminé jusqu'où l'intensité du champ électrique pouvait descendre pour pouvoir peupler efficacement le niveau avec un minimum de puissance de laser. Ce champ électrique extérieur résiduel maximum est mesuré à moins de 10 V/cm. Le processus d'ionisation nécessite un champ externe supérieur à 2,5 kV/cm pour le niveau de Rydberg particulier choisi ici. Par conséquent, pour peupler efficacement les niveaux de Rydberg qui n'existent faiblement qu'à une tension élevée, les extracteurs doivent être excités de moins de 10 V/cm à plus de 2,5 kV/cm, les extracteurs étant excités de manière synchrone avec les cycles de pause du laser.

Dans au moins un mode de réalisation de la présente invention, le sous-système de laser 101 est capable

d'une fréquence de répétition d'impulsions comprise entre 5 kHz et 30 kHz. Le sous-système laser 101 est de préférence basé sur une conception d'amplificateur déclenché à oscillateur maître. L'oscillateur maître de
5 chaque laser se compose de préférence d'un cristal de titane/saphir possédant un laser germe continu injecté, à la longueur d'onde requise, fourni par une diode laser. Dans au moins un mode de réalisation, on utilise environ 50 milliwatts. L'oscillateur maître est
10 également pompé par des lasers Nd/YAG impulsionnels à doublage de fréquence, au nombre de deux dans le mode de réalisation préféré.

Dans un autre mode de réalisation, on utilise un laser de faible puissance pour pomper optiquement les
15 atomes de thallium de l'état fondamental 501 au premier état excité 505. Comme on l'a noté plus haut, une longueur d'onde de transition du laser, λ_{RS} , de 377,7 nanomètres est nécessaire pour atteindre l'état résonant 505. On sait que les atomes à l'état 505
20 subissent une décroissance radiative à la fois vers l'état fondamental 501 et vers un état métastable 509 (c'est-à-dire $^2P_{3/2}$, $6s^26p$) avec une probabilité à peu près égale. En pompant de manière continue des atomes qui se trouvent dans l'état fondamental, la totalité de
25 la population peut être transférée à l'état métastable 509. Il existe plusieurs trajets isotopiquement sélectifs en deux étapes pour peupler des états de Rydberg élevés à partir de l'état métastable 509.

Bien qu'il y ait plusieurs trajets en deux étapes
30 qui soient faisables tant du point de vue technique qu'économique, plusieurs facteurs doivent être pris en compte. Premièrement, pour produire comme on le souhaite plusieurs kilogrammes de thallium enrichi

chaque année, une vaporisation de plusieurs grammes de thallium par heure est nécessaire. La largeur Doppler associée à cette quantité de vaporisation est typiquement de 1 à 2 GHz, tandis que l'écart isotopique pour la première transition est de 1,66 GHz seulement. Deuxièmement, lorsque la transition est résonante pour le thallium 203, le thallium 205 est hors résonance d'une valeur égale à l'écart isotopique de 1,66 GHz. Il en résulte qu'il existe une probabilité non nulle que le thallium 205 subisse la même transition, quoique à une vitesse plus lente. Toutefois, cette vitesse est proportionnelle à la puissance du laser qui produit λ_{RS} . Etant donné que la puissance laser consommée par l'absorption du thallium 203 est supérieure à celle nécessaire pour saturer la transition, il est très probable qu'une partie substantielle du thallium 205 va subir la même transition. En conséquence, il est peu probable que la population à l'état métastable sera isotopiquement sélective et une puissance du laser λ_{RS} substantiellement plus élevée que dans le cas où seul le thallium 203 absorbe sera nécessaire.

Le manque de sélectivité isotopique dans la population de l'état métastable 209 peut être pallié en peuplant de manière isotopiquement sélective un état de Rydberg à partir de l'état métastable. De préférence, dans ce mode de réalisation, la deuxième étape se fait entre l'état métastable 509 ($7792,7 \text{ cm}^{-1}$) et un état 511 ($36199,9 \text{ cm}^{-1}$) qui est soit l'état ($^2D_{3/2} 6s^26d$), soit l'état ($^3D_{5/2} 6s^26d$). La longueur d'onde du laser requise pour cette transition est de 352,0 nanomètres. La section efficace de la transition est de $4,5 \times 10^{-12}$. Cette transition présente également un écart isotopique relativement petit de moins de 2 GHz. La transition finale entre l'état 511

et l'état de Rydberg 507 nécessite une longueur d'onde de 850 nanomètres et une puissance du laser associé de 20 watts. Par conséquent, ce mode de réalisation de l'invention nécessite trois lasers de procédé avec des
5 puissances et des longueurs d'onde associées d'environ 1 watt à 377,7 nanomètres, 1 watt à 352,0 nanomètres et 20 watts à 850 nanomètres.

Séparation du plomb 210

10 La figure 6 est une illustration du trajet photo-sélectif utilisé pour la séparation isotopique par laser du plomb 210. Comme on peut le voir, on utilise un processus à deux photons dans lequel un photon de fréquence λ_1 excite les atomes de plomb 210 à partir
15 d'un état fondamental 601 (c'est-à-dire l'état $6s^26p^2$) vers un état intermédiaire 603. L'état 603 est voisin de l'état résonant 605 (c'est-à-dire l'état $6s^26p7s$). L'atome à l'état 603 est ensuite excité par un deuxième photon de fréquence λ_2 vers un état de Rydberg final
20 607 (c'est-à-dire $6s^26pnp$, avec $n \geq 19$). Comme le comprendront les spécialistes de la technique, à l'état 607, l'électron de l'atome n'est pas vraiment libre, c'est-à-dire que l'atome ne se trouve pas dans le continuum au-dessus du potentiel d'ionisation à
25 $59\,819\text{ cm}^{-1}$. Au lieu de cela, l'atome est effectivement ionisé compte tenu de la couche élevée (soit $n \geq 19$) occupée par l'électron. Dans le mode de réalisation préféré de l'invention telle qu'elle est appliquée à la séparation du plomb 210, la fréquence λ_1 est une
30 fréquence allant jusqu'à 283 nanomètres, tandis que la fréquence λ_2 est approximativement de 412 nanomètres.

L'approche à deux photons illustrée sur la figure 6 réalise plusieurs objectifs. Premièrement, étant donné

que l'état intermédiaire 603 est en dehors de l'état résonant 605, une diffusion de Raman stimulée (DRS) est substantiellement évitée. Dans le plomb, l'effet Raman, c'est-à-dire le processus de diffusion inélastique de la lumière basé sur la diffusion de Raman, est dû principalement à la composante hyperfine à $F = 3/2$ du plomb 207. Spécifiquement, le coefficient de gain de DRS décroît du carré de la quantité selon laquelle le premier état excité 603 est désaccordé à partir de l'état 605. Par conséquent, en utilisant un procédé à deux photons dans lequel le premier état excité est hors résonance, l'effet Raman peut être effectivement supprimé. En revanche, si le premier état excité était une transition résonante, une partie potentiellement importante du rayonnement incident de traitement du laser serait déviée dans la transition de Raman.

L'approche de la présente invention est seulement en résonance pour le plomb 210. Par conséquent, un deuxième avantage de l'approche à deux photons de la présente invention est que l'absorption directe du rayonnement du processus de première transition, c'est-à-dire le rayonnement de fréquence λ_1 , par le plomb 207 est minimisée car elle est hors résonance. De plus, étant donné que le plomb 207 est hors résonance dans les deux étapes, l'absorption par le plomb 207 est réduite encore plus.

Un troisième avantage de la nature hors résonance du procédé de la présente invention est que l'émission spontanée amplifiée peut être substantiellement réduite, voire totalement évitée. Il est souhaitable d'éviter l'émission spontanée amplifiée car cet effet réduirait le rendement du processus global de séparation isotopique.

Par conséquent, en désaccordant le premier état excité 603 loin de l'état 605, cet effet peut être minimisé. Ce processus d'excitation par laser supprime les problèmes de diffusion Raman stimulée et d'absorption de la lumière par le plomb 207. Il tire parti de la grande section efficace du premier état excité qui aboutit en partie au coefficient élevé de gain de DRS. Le procédé nécessite seulement des fluences de laser modestes, même pour les désaccords importants. Aucune population réelle n'est transférée vers le niveau intermédiaire quasi-résonant.

Le procédé accorde la première étape hors résonance et compense le désaccord dans la deuxième étape. Le gain de Raman stimulé dû à la composante hyperfine à $F = 3/2$ du plomb 207 est maintenu en dessous du seuil par le désaccord. Etant donné que le coefficient de gain de DRS diminue du carré du désaccord, ceci supprime effectivement le gain de DRS. Une transition résonante se traduirait par une déviation de la lumière du processus dans la transition de Raman.

Par conséquent, l'épuisement isotopique peut illuminer la vapeur de manière répétée, favorisant la purification isotopique efficace du plomb. L'épuisement soumet la vapeur atomique à de multiples zones d'illumination successives 201 avant que le plomb non sélectionné soit recueilli sur le collecteur neutre 111. L'épuisement augmente le débit et le rendement d'un système de SILVA tout en réduisant la puissance de laser nécessaire et les traitements entre étapes. De même, des injections répétées du faisceau λ_1 (vis-à-vis du faisceau λ_2) diminue l'élargissement de la puissance et augmente la sélectivité du système de SILVA 100.

Pour des systèmes de SILVA séparant des éléments

avec une probabilité de réflexion significative à l'impact sur une surface (par exemple le thallium et le plomb), un collimateur conçu avec une grande surface réduit la capture non sélective, augmente le débit des
5 systèmes et augmente la pureté du courant enrichi.

Comme le comprendront les spécialistes de la technique, la présente invention peut être réalisée sous d'autres formes spécifiques sans s'écarter de son esprit ou de ses caractéristiques essentielles. En
10 conséquence, les présentations et les descriptions faites dans les présentes doivent être considérées comme illustratives et non limitatives de la portée de l'invention telle qu'elle est exposée dans les revendications suivantes.

REVENDICATIONS

1. Procédé de séparation d'un isotope thallium 203 à partir d'une vapeur de thallium ayant une pluralité d'isotopes comprenant l'isotope thallium 203, ladite méthode étant caractérisée en ce qu'elle comprend les
5 étapes consistant à :

produire des photons ayant une première fréquence au moyen d'un système de laser (101), dans lequel une première longueur d'onde correspondant à ladite première fréquence est de 377,7 nanomètres environ ;

10 produire des photons ayant une deuxième fréquence au moyen dudit système de laser, dans lequel une deuxième longueur d'onde correspondant à ladite deuxième fréquence est de 443,7 nanomètres environ ;

pomper lesdits photons ayant lesdites première et
15 deuxième fréquences dans ladite vapeur de thallium, dans lequel lesdits photons ayant ladite première fréquence excitent une pluralité d'atomes de thallium 203 à l'état fondamental vers un état intermédiaire quasi-résonant, et dans lequel lesdits photons ayant
20 ladite deuxième fréquence excitent ladite pluralité d'atomes de thallium 203 dans ledit état intermédiaire quasi-résonant vers un état de Rydberg final ; et

recueillir ledit isotope thallium 203.

2. Procédé selon la revendication 1, dans lequel
25 ladite première fréquence est accordée à environ 1 GHz d'une résonance du thallium 203.

3. Procédé selon la revendication 1, comprenant en plus les étapes consistant à :

produire des photons ayant une troisième fréquence
30 au moyen dudit système de laser (101) ; et

pomper lesdits photons ayant ladite troisième

fréquence dans ladite vapeur de thallium, dans lequel lesdits photons ayant ladite première fréquence accèdent aux atomes de thallium 203 à l'état fondamental dans un premier niveau F et lesdits photons
5 ayant ladite troisième fréquence accèdent aux atomes de thallium 203 à l'état fondamental dans un deuxième niveau F.

4. Procédé selon la revendication 1, dans lequel ladite étape de récupération dudit isotope thallium 203
10 comprend de plus l'étape consistant à appliquer un champ électrique à ladite vapeur de thallium.

5. Procédé selon la revendication 1, dans lequel ledit état intermédiaire quasi-résonant est voisin de $26\,477,5\text{ cm}^{-1}$ et ledit état de Rydberg final est voisin
15 de $49\,000\text{ cm}^{-1}$.

6. Procédé de séparation d'un isotope de thallium 203 à partir d'une vapeur de thallium ayant une pluralité d'isotopes comprenant l'isotope thallium 203, ladite méthode étant caractérisée en ce qu'elle
20 comprend les étapes consistant à :

produire des photons ayant une première fréquence au moyen d'un système de laser (101), dans lequel une première longueur d'onde correspondant à ladite première fréquence est de 377,7 nanomètres environ ;

25 produire des photons ayant une deuxième fréquence au moyen dudit système de laser, dans lequel une deuxième longueur d'onde correspondant à ladite deuxième fréquence est de 352 nanomètres environ ;

produire des photons ayant une troisième fréquence
30 au moyen dudit système de laser, dans lequel une troisième longueur d'onde correspondant à ladite troisième fréquence est de 850 nanomètres environ ;

pomper lesdits photons ayant ladite première

fréquence dans ladite vapeur de thallium, dans lequel
lesdits photons ayant ladite première fréquence
excitent une pluralité d'atomes de thallium 203 à
l'état fondamental vers un état intermédiaire quasi-
5 résonant, dans lequel ladite pluralité d'atomes de
thallium 203 dans ledit état intermédiaire quasi-
résonant décroissent de manière radiative vers un état
métastable ;

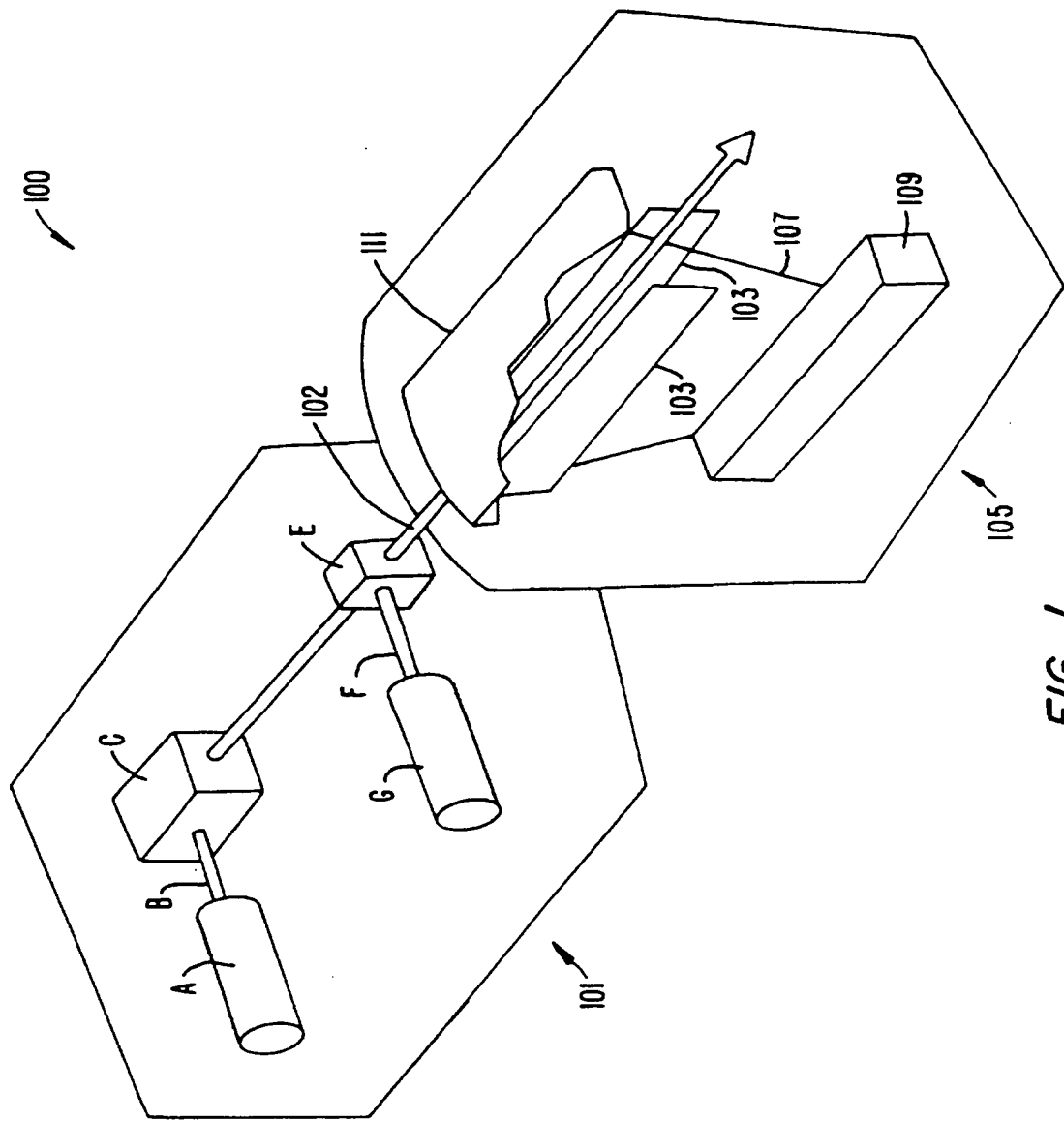
pomper lesdits photons ayant ladite deuxième
10 fréquence dans ladite vapeur de thallium, dans lequel
lesdits photons ayant ladite deuxième fréquence
excitent ladite pluralité d'atomes de thallium 203 dans
ledit état métastable vers un deuxième état
intermédiaire ;

15 pomper lesdits photons ayant ladite troisième
fréquence dans ladite vapeur de thallium, dans lequel
lesdits photons ayant ladite troisième fréquence
excitent ladite pluralité d'atomes de thallium 203 dans
ledit deuxième état intermédiaire vers un état de
20 Rydberg final ; et

recueillir ledit isotope thallium 203.

7. Procédé selon la revendication 6, dans lequel
ledit état intermédiaire quasi-résonant est voisin de
26 477,5 cm^{-1} , ledit état métastable est voisin de
25 7 792,7 cm^{-1} , ledit deuxième état intermédiaire est
voisin de 36 199,9 cm^{-1} , et ledit état de Rydberg final
est voisin de 49 000 cm^{-1} .

8. Procédé selon la revendication 6, dans lequel
ladite étape de récupération dudit isotope thallium 203
30 comprend en plus l'étape consistant à appliquer un
champ électrique à ladite vapeur de thallium.



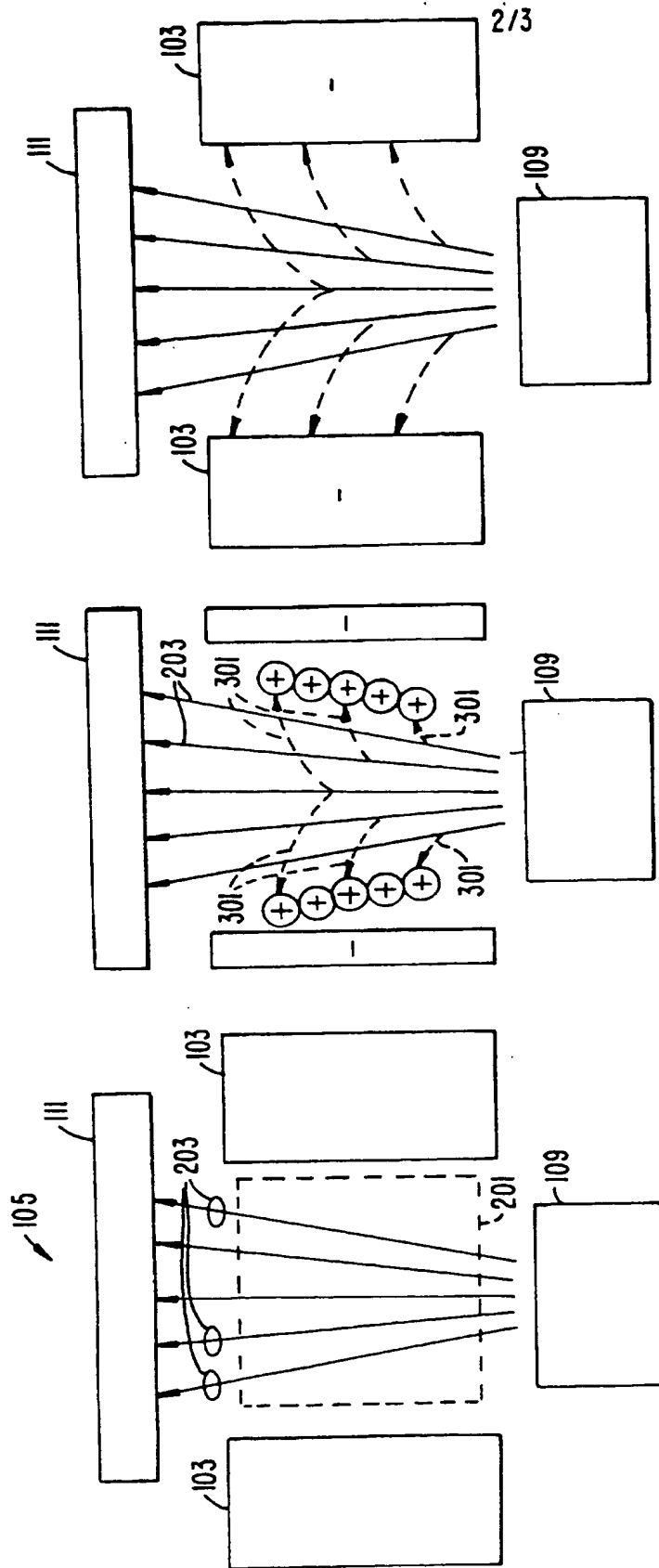


FIG. 2

FIG. 3

FIG. 4



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.